

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 09-129376
(43)Date of publication of application : 16.05.1997

(51)Int.CI. H05B 33/28
H05B 33/04

(21)Application number : 07-281457 (71)Applicant : IDEMITSU KOSAN CO LTD
(22)Date of filing : 30.10.1995 (72)Inventor : SAKAI TOSHIO
MATSUURA MASAHIKE

(54) ORGANIC EL ELEMENT

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic EL element that is not uneven in brightness and has high emission stability although employing a transparent resin substrate as its transparent substrate.

SOLUTION: A transparent thermosetting-resin substrate having a flat surface is used as a transparent resin substrate, a transparent electrode made of a crystalline transparent conductive film with a grain size of 500 angstroms or less or an amorphous transparent conductive film is formed over the flat surface of the transparent thermosetting resin substrate via a moistureproof inorganic oxide film, and a counter electrode is formed over the transparent electrode via an organic single-layered part or an organic multilayered part containing an organic emitter, to form an organic EL element.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平9-129376

(43)公開日 平成9年(1997)5月16日

(51)Int.Cl.⁶

H 05 B 33/28
33/04

識別記号

府内整理番号

F I

技術表示箇所

H 05 B 33/28
33/04

審査請求 未請求 請求項の数5 O.L (全11頁)

(21)出願番号

特願平7-281457

(22)出願日

平成7年(1995)10月30日

(71)出願人 000183646

出光興産株式会社

東京都千代田区丸の内3丁目1番1号

(72)発明者 酒井 傑男

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株
式会社内

(72)発明者 松浦 正英

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株
式会社内

(74)代理人 弁理士 中村 静男 (外2名)

(54)【発明の名称】 有機EL素子

(57)【要約】

【課題】 透明基板として透明樹脂基板を用いた従来の有機EL素子においては、輝度ムラがあり、また、その発光安定性も低かった。

【解決手段】 平坦面を有する透明熱硬化性樹脂基板を透明樹脂基板として用い、この透明熱硬化性樹脂基板の前記平坦面上に、グレインサイズ500オングストローム以下の結晶質透明導電膜もしくは非晶質透明導電膜からなる透明電極を防湿性無機酸化物膜を介して形成し、この透明電極上有機発光材料を含む有機単層部または有機多層部を介して対向電極を形成して有機EL素子とする。

Ref: 1

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 透明樹脂基板と、この透明樹脂基板の片面上に防湿性無機酸化物膜を介して形成された透明電極と、有機発光材料を含む有機単層部または有機多層部を介して前記透明電極上に形成された対向電極とを有し、前記透明樹脂基板が平坦面を有する透明熱硬化性樹脂基板からなり、この透明熱硬化性樹脂基板の前記平坦面上に前記防湿性無機酸化物膜が形成されており、前記透明電極がグレインサイズ500オングストローム以下の結晶質透明導電膜もしくは非晶質透明導電膜からなることを特徴とする有機EL素子。

【請求項2】 透明熱硬化性樹脂基板が有している平坦面の表面粗さの二乗平均値が300オングストローム以下で、かつ、該平坦面上における500μm角の領域内に存在する600オングストローム以上の突起の数が20個以下である、請求項1に記載の有機EL素子。

【請求項3】 透明熱硬化性樹脂基板がポリオレフィン系の透明熱硬化性樹脂からなる、請求項1または請求項2に記載の有機EL素子。

【請求項4】 透明電極が結晶質ITO膜からなる、請求項1～請求項3のいずれか1項に記載の有機EL素子。

【請求項5】 透明電極が、インジウム元素および亜鉛元素を主要カチオン元素として含有する非晶質酸化物膜からなり、この非晶質酸化物膜におけるインジウムの原子比In/(In+Zn)が0.55～0.90である、請求項1～請求項4のいずれか1項に記載の有機EL素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は有機エレクトロルミネッセンス(以下、エレクトロルミネッセンスを「EL」と略記する。)素子に係り、特に、透明樹脂基板用いた有機EL素子に関する。

【0002】

【従来の技術】EL素子は自己発光性であるため視認性が高く、また、完全固体素子であるために耐衝撃性に優れている等の特徴を有していることから、各種の表示素子や面光源等への利用が試みられている。EL素子は無機EL素子と有機EL素子とに大別されるが、有機EL素子は無機EL素子に比べて駆動電圧を大幅に低下させることができるという利点を有しているばかりでなく、青色を含めたフルカラー化が可能であるという特徴をしている。

【0003】上記の特徴を有する有機EL素子は、通常、透明基板上に透明電極、有機発光材料を含む有機単層部または有機多層部、および対向電極を順次積層した構造を有しており、透明電極としては、透明性および導電性が高い等の理由から、従来より結晶質のインジウム・スズ酸化物膜(以下「結晶質ITO膜」という。)が

2

多用されている。結晶質物質からなる透明電極(以下「結晶質透明電極」という。)を用いた有機EL素子では、当該結晶質透明電極の表面の微結晶粒の大きさ(グレインサイズ)が素子の輝度ムラおよび発光安定性に大きく影響しており、このグレインサイズを500オングストローム以下にすることによって輝度ムラがなく、発光安定性の高い有機EL素子が得られることが知られている(特開平6-76950号公報参照)。

【0004】ところで、有機EL素子の透明基板としては従来よりガラス基板が用いられてきたが、有機EL素子の軽量化や耐衝撃性の更なる向上を図るために、透明基板として透明樹脂基板を用いることが検討されている。そして、この透明樹脂基板としては、ポリメチルメタクリレート、ポリスチレン、ポリエチレンテレフタレート等の熱可塑性樹脂からなる基板を利用することが試みられている(特開平2-251429号公報参照)。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、有機EL素子の透明基板として上述した熱可塑性樹脂基板を用いた場合には、輝度ムラがなく、発光安定性の高い有機EL素子を得ることはできない。

【0006】本発明の目的は、透明基板として透明樹脂基板を用いているにもかかわらず、輝度ムラがなく、発光安定性の高いものを得ることが可能な有機EL素子を提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、熱可塑性樹脂基板を用いた場合に輝度ムラがなく、発光安定性の高い有機EL素子を得ることができない理由について鋭意研究した結果、(1)熱可塑性樹脂基板の表面の平坦性がそもそも低く、そのために当該熱可塑性樹脂基板上に形成した透明電極表面の平坦性も損なわれる、(2)熱可塑性樹脂基板上に、当該熱可塑性樹脂基板が熱変形を起こさない基板温度条件でグレインサイズ500オングストローム以下の結晶質透明導電膜を形成することは困難である、(3)グレインサイズ500オングストローム以下の結晶質透明導電膜は、グレインサイズが500オングストロームを超える結晶質透明導電膜を一旦形成した後に当該結晶質透明導電膜にUVオゾン照射やイオン照射を施すことによっても得ることができるが(特開平6-76950号公報参照)、グレインサイズが500オングストロームを超える結晶質透明導電膜を熱可塑性樹脂基板上に形成した後にUVオゾン照射やイオン照射を行って当該結晶質透明導電膜のグレインサイズを500オングストロームにすると、UVオゾン照射やイオン照射によって熱可塑性樹脂基板が損傷を受けることから、輝度ムラがなく、発光安定性の高い有機EL素子を得ることができないことを見出した。

【0008】本発明はこのような知見に基づいてなされたものであり、上記の目的を達成する本発明の有機EL

50

素子は、透明樹脂基板と、この透明樹脂基板上に防湿性無機酸化物膜を介して形成された透明電極と、有機発光材料を含む有機单層部または有機多層部を介して前記透明電極上に形成された対向電極とを有し、前記透明樹脂基板が平坦面を有する透明熱硬化性樹脂基板からなり、この透明熱硬化性樹脂基板の前記平坦面上に前記防湿性無機酸化物膜が形成されており、前記透明電極がグレンサイズ500オングストローム以下の結晶質透明導電膜もしくは非晶質透明導電膜からなることを特徴とするものである。

【0009】

【発明の実施の形態】以下、本発明の実施の形態について詳細に説明する。本発明の有機EL素子は、上述したように、透明樹脂基板と、この透明樹脂基板上に防湿性無機酸化物膜を介して形成された透明電極と、有機発光材料を含む有機单層部または有機多層部を介して前記透明電極上に形成された対向電極とを有しており、前記の透明樹脂基板は、平坦面を有する透明熱硬化性樹脂基板からなる。

【0010】ここで、透明熱硬化性樹脂基板について本発明でいう「平坦面」とは、輝度ムラがなく、発光安定性の高い有機EL素子を得ることが可能な平坦性を有している面を意味し、当該「平坦面」に要求される平坦性は、防湿性無機酸化物膜の材質および形成方法、透明電極の材質および形成方法等に応じて異なる。例えば、後述する材質の防湿性無機酸化物膜および透明電極を物理的蒸着法によって形成する場合には、当該「平坦面」は、表面粗さの二乗平均値が300オングストローム以下で、かつ、当該平坦面上における500μm角の領域内に存在する600オングストローム以上の突起の数が20個以下の面であることが好ましい。なお、上記の平坦面について本発明でいう「表面粗さの二乗平均値」とは、表面の凹凸についてその高さの平均値からのずれの二乗平均値であり、表面の凹凸の大きさの程度を意味する。また、本発明でいう「平坦面上における500μm角の領域内に存在する600オングストローム以上の突起の数」とは、前記の平坦面上に任意に10箇所設定した500μm角の領域の各々に存在する高さ600オングストローム以上の突起の数の平均値を意味する。各領域内の突起の高さおよびその数は、電子顕微鏡、原子間力顕微鏡等を用いて求めることができる。

【0011】上記平坦面を有する透明熱硬化性樹脂基板は、波長400～700nmの光の透過率が70%以上、好ましくは90%以上であることが望ましい。このような透明熱硬化性樹脂基板としては、透明性および成形性の点から、ポリオレフィン系の透明熱硬化性樹脂からなるものが好ましく、不飽和基を2個以上有する多官能单量体を含有した組成物を重合させてなるポリオレフィン系共重合体がより好ましく用いられる。

【0012】不飽和基を2個以上有する上記の多官能单量体

量体の具体例としては、(i) エチレングリコールジ(メタ)アクリレート、ジエチレングリコールジ(メタ)アクリレート、トリエチレングリコールジ(メタ)アクリレート、グリセロールジ(メタ)アクリレート、グリセロールトリ(メタ)アクリレート、トリメチロールプロパンジ(メタ)アクリレート、トリメチロールプロパントリ(メタ)アクリレート、ペントエリスリトールジ(メタ)アクリレート、ペントエリスリトールトリ(メタ)アクリレート、ペントエリスリトールテトラ(メタ)アクリレート等の多価アルコールのジー、トリー、テトラー(メタ)アクリレート類、(ii) p-ジビニルベンゼン、o-ジビニルベンゼン等の芳香族多官能单量体、(iii) (メタ)アクリル酸ビニルエステル、(メタ)アクリル酸アリルエステル等のエステル類、(iv) ブタジエン、ヘキサジエン、ペントジエン等のジエン類、(v) ジクロロフォスファゼンを原料として重合多官能基を導入したfosfazene骨格を有する单量体、(vi) トリアリルイソシアヌレート等の異原子環状骨格を有する多官能单量体等が挙げられる。

【0013】上記の透明熱硬化性樹脂は、耐光性、耐酸化劣化性および帯電防止性の各観点から、各種紫外線吸収剤、酸化防止剤および帯電防止剤を含有したものであることが好ましい。透明熱硬化性樹脂が上記のポリオレフィン系共重合体である場合、当該ポリオレフィン系共重合体は、紫外線吸収性あるいは酸化防止性を有する单量体を使用したものであることが好ましい。このような单量体の好ましい例としては、不飽和二重結合を有するベンゾフェノン系紫外線吸収剤、不飽和二重結合を有するフェニルベンゾエート系紫外線吸収剤、ヒンダードアミノ基を置換基として有する(メタ)アクリル酸单量体等が挙げられる。これらの单量体は、目的とするポリオレフィン系共重合体を得るために使用する单量体の全量に対して0.5～2.0wt%の範囲で使用されていることが好ましい。

【0014】本発明の有機EL素子を構成している透明熱硬化性樹脂基板は、上述した平坦面を有すものであればいかなる重合方法および成形方法によって得られたものであってもよい。また、その厚みは目的とする有機EL素子の用途等に応じて適宜選択可能であるが、当該透明熱硬化性樹脂基板が上述したポリオレフィン系共重合体からなる場合には、その厚みは、機械的特性を考慮して0.1～1.5mmであることが好ましく、0.1～1.0mmであることがより好ましい。

【0015】上述した透明熱硬化性樹脂基板における前述した平坦面上には、防湿性無機酸化物膜が形成されている。この防湿性無機酸化物膜は、後述する有機発光材料を含有する有機单層部または有機多層部に酸素や水分が侵入するのを防止するために、上述した透明熱硬化性樹脂基板にガスバリア性を付与するためのものである。当該防湿性無機酸化物膜の具体例としては、ケイ素酸化

物 (SiO_x) , アルミニウム酸化物 (Al_2O_x) , チタン酸化物 (TiO_x) , ジルコニウム酸化物 (ZrO_x) , イットリウム酸化物 (Y_2O_x) , イッテルビウム酸化物 (Yb_2O_x) , マグネシウム酸化物 (MgO_x) , タンタル酸化物 (Ta_2O_x) , セリウム酸化物 (CeO_x) またはハフニウム酸化物 (HfO_x) からなる膜が挙げられる。

【0016】防湿性無機酸化物膜の膜厚は当該防湿性無機酸化物膜の材質によって適宜変更可能であるが、概ね 50~2000 オングストロームの範囲内である。膜厚があまりに薄いと、所望のガスバリア性を透明熱硬化性樹脂基板に付与することができない。一方、膜厚があまりに厚いと光透過性が低下する結果、有機EL素子の輝度が低下する。防湿性無機酸化物膜の膜厚は、100~1200 オングストロームとすることが好ましい。

【0017】防湿性無機酸化物膜の表面の平坦性は、輝度ムラがなく、発光安定性が高い有機EL素子を得るうえから、当該防湿性無機酸化物膜の下地である前述した透明熱硬化性樹脂基板における平坦面の平坦性と同程度に高いことが望ましい。このような平坦性を有する防湿性無機酸化物膜は、直流方式、マグネットロン方式、高周波放電方式等のスパッタリング法や、真空蒸着法、イオンプレーティング法、プラズマCVD法等の方法によって形成することができる。いずれの方法によって防湿性無機酸化物膜を形成する場合でも、成膜時の基板温度は、前述した透明熱硬化性樹脂基板が実質的に熱変形を起こさない温度とすることが好ましい。防湿性無機酸化物膜の成膜時に透明熱硬化性樹脂基板が熱変形を起こすと、輝度ムラがなく、発光安定性の高い有機EL素子を得ることが困難になる。

【0018】上述した防湿性無機酸化物膜上に形成されている透明電極は、前述したように、グレインサイズ 500 オングストローム以下の結晶質透明導電膜もしくは非晶質透明導電膜からなる。この透明電極は、結晶質透明導電膜からなるものであってもよいし、非晶質透明導電膜からなるものであってもよいが、結晶質透明導電膜からなるものについては、上述のように、グレインサイズが 500 オングストローム以下のものに限定される。グレインサイズが 500 オングストロームを超えると、輝度ムラがなく、発光安定性の高い有機EL素子を得ることが困難になる。なお、本発明でいう「グレインサイズ 500 オングストローム以下の結晶質透明導電膜」とは、後述する有機单層部または有機多層部が形成される側の膜表面におけるグレインサイズが 500 オングストローム以下である結晶質透明導電膜を意味する。グレインサイズは、電子顕微鏡や原子間力顕微鏡等を用いて求めることができる。

【0019】透明電極が上記の結晶質透明導電膜からなる場合、当該結晶質透明導電膜のグレインサイズは 10 ~ 500 オングストロームであることが好ましい。ま

た、その材質の具体例としては、結晶質ITO、酸化スズ、酸化亜鉛、ヨウ化銅等が挙げられるが、透明性、低電気抵抗という観点から、結晶質ITOが特に好ましい。

【0020】グレインサイズ 500 オングストローム以下の結晶質透明導電膜は、ECR プラズマ（電子サイクロトン共鳴プラズマ）スパッタリング法、高周波放電方式のスパッタリング法等の方法によって、前述した防湿性無機酸化物膜上に直接形成することができる。また、

10 マグネットロンスパッタリング法、真空蒸着法、イオンプレーティング法等の方法によってグレインサイズが 500 オングストロームを超える結晶質透明導電膜を一旦得た後、当該結晶質透明導電膜に対してそのグレインサイズが 500 オングストローム以下になるまで UV オゾン照射、あるいは、酸素イオン、窒素イオン、アルゴンイオン等のイオンの照射を行うことによても、グレインサイズ 500 オングストローム以下の結晶質透明導電膜を得ることができる。UV オゾン照射の条件は、例えば、光源の主波長 2537 オングストローム、1849

20 オングストローム、照射槽内の酸素ガス導入量 10 リットル/分、基板温度 10~30°C、照射時間 10 分~5 時間である。また、イオン照射の条件は、例えば、照射槽内圧 10^{-6} ~ 10^{-1} Pa、照射ドライブ電圧 10~1000 V、照射時間 10 秒~1 時間である。

【0021】なお、いずれの方法によって結晶質透明導電膜を形成する場合でも、防湿性無機酸化物膜を成膜する場合と同様の理由から、成膜時の基板温度は前述した透明熱硬化性樹脂基板が実質的に熱変形を起こさない温度とすることが好ましい。また、上述した UV オゾン照射およびイオン照射は、グレインサイズ 500 オングストローム以下の結晶質透明導電膜に対して行ってもよい。UV オゾン照射やイオン照射を行った場合には、透明熱硬化性樹脂基板を損傷させることなく結晶質透明導電膜表面の清浄化を図ることができる。

【0022】一方、前記の非晶質透明導電膜の材質の具体例としては、インジウム元素および亜鉛元素を主要カチオン元素として含有する非晶質酸化物膜が挙げられる。ここで、本発明でいう「非晶質透明導電膜」とは、電子顕微鏡や原子間力顕微鏡等による形態観察で粒界が観察されない構造を有する透明導電膜、または電子線回折等によって格子定数が決定されない構造を有する透明導電膜を意味する。

【0023】非晶質透明導電膜として、インジウム元素および亜鉛元素を主要カチオン元素として含有する上記の非晶質酸化物膜を用いる場合、当該非晶質酸化物膜におけるインジウムの原子比 $I_n / (I_n + Z_n)$ は 0.55~0.90 であることが好ましい。前記の原子比が 0.55 未満では膜の導電性が低く、0.90 を超えると膜のエッチング特性あるいは耐湿熱性が低下する。

【0024】インジウム元素および亜鉛元素を主要カチ

オン元素として含有する上記の非晶質酸化物膜は、カチオン元素として実質的にインジウム元素および亜鉛元素のみを含有するものであってもよいし、インジウム元素および亜鉛元素以外のカチオン元素として価数が正3価以上である1種以上の第3元素を含有するものであってもよい。前記第3元素の具体例としては、錫(Sn)、アルミニウム(Al)、アンチモン(Sn)、ガリウム(Ga)、ゲルマニウム(Ge)、チタン(Ti)が挙げられる。第3元素の含有量は、その総量の原子比(全第3元素)/(In+Zn+全第3元素)が0.2以下となる量であることが好ましい。第3元素の総量の原子比が0.2を超えると、膜の導電性が低下しやすい。

【0025】非晶質透明導電膜は、ECRプラズマ(電子サイクロトロン共鳴プラズマ)スパッタリング法、マグネトロンスパッタリング法等の方法によって、前述した防湿性無機酸化物膜上に直接形成することができる。このとき、成膜時の基板温度は、防湿性無機酸化物膜を成膜する場合と同様の理由から、前述した透明熱硬化性樹脂基板が実質的に熱変形を起こさない温度とすることが好ましい。非晶質透明導電膜を防湿性無機酸化物膜上に形成した後、必要に応じてUVオゾン照射やイオン照射を行ってもよい。UVオゾン照射やイオン照射を行うことにより、透明熱硬化性樹脂基板を損傷させることなく非晶質透明導電膜表面の清浄化を図ることができる。

【0026】上述した結晶質透明導電膜または非晶質透明導電膜からなる透明電極の膜厚は、所望の導電性および光透過性等が得られるよう、その材質に応じて適宜選択される。例えば、結晶質ITOからなる透明電極の膜厚は概ね100~10000オングストロームの範囲内で適宜選択可能である。光透過率を高めるという観点から、特に100~2000オングストロームとするのが好ましい。また、インジウム元素および亜鉛元素を主要カチオン元素として含有する非晶質酸化物膜からなる透明電極の膜厚は、当該非晶質酸化物膜におけるインジウムの原子比In/(In+Zn)が0.55~0.90である場合には、3~3000nmの範囲内で適宜選択可能である。この場合、当該非晶質酸化物膜からなる透明電極の膜厚は5~1000nmであることが好ましく、10~800nmであることが特に好ましい。

【0027】透明電極は、上述した結晶質透明導電膜または非晶質透明導電膜を成膜する際に、目的とする透明電極の形状に対応した所定形状の開口部を有するマスクを使用することによって得ることができる。また、成膜後にUVオゾン照射またはイオン照射を行うことによって上述した透明導電膜を得る場合には、UVオゾン照射またはイオン照射の対象となる透明導電膜を成膜する際に、目的とする透明電極の形状に対応した所定形状の開口部を有するマスクを使用し、この後にUVオゾン照射またはイオン照射を行うことによって、目的とする透明電極を得ることができる。

【0028】あるいは、上述した結晶質透明導電膜または非晶質透明導電膜からなる大面積の膜を一旦成膜した後、この膜をフォトリソグラフィー法等によって所望形状にパターニングすることによっても、目的とする透明電極を得ることができる。さらに、成膜後にUVオゾン照射またはイオン照射を行うことによって上述した透明導電膜からなる透明電極を得る場合には、UVオゾン照射またはイオン照射の対象となる透明導電膜からなる大面積の膜を一旦成膜し、この膜をフォトリソグラフィー法等によって所望形状にパターニングした後にUVオゾン照射もしくはイオン照射を行うか、または、前記大面積の膜にUVオゾン照射またはイオン照射を行った後にフォトリソグラフィー法等によって所望形状にパターニングすることによって、目的とする透明電極を得ることができる。

【0029】本発明の有機EL素子では、上述した透明電極上に、有機発光材料を含む有機単層部または有機多層部が形成されており、この有機単層部上または有機多層部上に対向電極が形成されている。透明電極上有機単層部または有機多層部が形成されており、この有機単層部上または有機多層部上に対向電極が形成されているという層構成自体は、透明基板側を光取出し面とする従来の有機EL素子と同じである。

【0030】すなわち、透明基板側を光取出し面とするタイプの有機EL素子における透明電極(陽極)から対向電極(陰極)にかけての層構成は、下記(1)~(4)の層構成に大別することができるが、本発明の有機EL素子における透明電極(陽極)から対向電極(陰極)にかけての層構成は、下記(1)~(4)のいずれかにすることができる。

- (1) 透明電極(陽極)/発光層/対向電極(陰極)
- (2) 透明電極(陽極)/正孔輸送層/発光層/対向電極(陰極)
- (3) 透明電極(陽極)/発光層/電子注入層/対向電極(陰極)
- (4) 透明電極(陽極)/正孔輸送層/発光層/電子注入層/対向電極(陰極)

【0031】ここで、発光層は通常1種または複数種の有機発光材料により形成されるが、有機発光材料と正孔輸送材料および/または電子注入材料との混合物や、当該混合物もしくは有機発光材料を分散させた高分子材料により形成される場合もある。また、上述した層構成の有機EL素子の外周に当該有機EL素子を覆うようにして、有機EL素子への水分や酸素の侵入を防止するための封止層が設けられる場合もある。

【0032】上記(1)のタイプの有機EL素子では発光層が本発明でいう「有機発光材料を含有する有機単層部」に相当し、上記(2)のタイプの有機EL素子では正孔輸送層と発光層が本発明でいう「有機発光材料を含有する有機多層部」に相当し、上記(3)のタイプの有機E

L素子では発光層と電子注入層が本発明でいう「有機発光材料を含有する有機多層部」に相当し、上記(4)のタイプの有機EL素子では正孔輸送層と発光層と電子注入層が本発明でいう「有機発光材料を含有する有機多層部」に相当する。発光層、正孔輸送層、電子注入層、対向電極（陰極）の材料としては、それぞれ種々の材料を用いることができる。

【0033】例えば、発光層の材料（有機発光材料）として使用可能な有機化合物としては、特に限定はないが、ベンゾチアゾール系、ベンゾイミダゾール系、ベンゾオキサゾール系等の蛍光増白剤が用いられる。これらの具体例として、例えば、2, 5-ビス(5, 7-ジ-*t*-ベンチル-2-ベンゾオキサゾリル)-1, 3, 4-チアジアゾール、4, 4'-ビス(5, 7-*t*-ベンチル-2-ベンゾオキサゾリル)スチルベン、4, 4'-ビス[5, 7-ジ-(2-メチル-2-ブチル)-2-ベンゾオキサゾリル]スチルベン、2, 5-ビス(5, 7-ジ-*t*-ベンチル-2-ベンゾオキサゾリル)チオフェン、2, 5-ビス[5- α , α -ジメチルベンジル-2-ベンゾオキサゾリル]チオフェン、2, 5-ビス[5, 7-ジ-(2-メチル-2-ブチル)-2-ベンゾオキサゾリル]-3, 4-ジフェニルチオフェン、2, 5-ビス(5-メチル-2-ベンゾオキサゾリル)チオフェン、4, 4'-ビス(2-ベンゾオキサゾリル)ビフェニル、5-メチル-2-[2-[4-(5-メチル-2-ベンゾオキサゾリル)フェニル]ビニル]ベンゾオキサゾール、2-[2-(4-クロロフェニル)ビニル]ナフト[1, 2-d]オキサゾール等のベンゾオキサゾール系、2, 2'-(p-フェニレンジビニレン)-ビスベンゾチアゾール等のベンゾチアゾール系、2-[2-[4-(2-ベンゾイミダゾリル)フェニル]ビニル]ベンゾイミダゾール、2-[2-(4-カルボキシフェニルビニル]ベンゾイミダゾール等のベンゾイミダゾール系等の蛍光増白剤が挙げられる。

【0034】金属キレート化オキシノイド化合物も有機発光材料として用いられ、その例としては、例えば、トリス(8-キノリノール)アルミニウム、ビス(8-キノリノール)マグネシウム、ビス(ベンゾ[f]-8-キノリノール)亜鉛、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウムオキシド、トリス(8-キノリノール)インジウム、トリス(5-メチル-8-キノリノール)アルミニウム、8-キノリノールリチウム、トリス(5-クロロ-8-キノリノール)ガリウム、ビス(5-クロロ-8-キノリノール)カルシウム、ポリ[亜鉛(I I)-ビス(8-ヒドロキシ-8-キノリノイル)メタン]等の8-ヒドロキシキノリン系金属錯体やジリチウムエピントリジョン等が挙げられる。

【0035】スチリルベンゼン系化合物も有機発光材料として用いられ、その例としては、例えは、1, 4-ビ

ス(2-メチルスチリル)ベンゼン、1, 4-ビス(3-メチルスチリル)ベンゼン、1, 4-ビス(4-メチルスチリル)ベンゼン、ジスチリルベンゼン、1, 4-ビス(2-エチルスチリル)ベンゼン、1, 4-ビス(3-エチルスチリル)ベンゼン、1, 4-ビス(2-メチルスチリル)-2-メチルベンゼン、1, 4-ビス(2-メチルスチリル)-2-エチルベンゼン等が挙げられる。

【0036】また、ジスチリルピラジン誘導体も有機発光材料として用いられ、その例としては、例えは、2, 5-ビス(4-メチルスチリル)ピラジン、2, 5-ビス(4-エチルスチリル)ピラジン、2, 5-ビス[2-(1-ナフチル)ビニル]ピラジン、2, 5-ビス(4-メトキシスチリル)ピラジン、2, 5-ビス[2-(4-ビフェニル)ビニル]ピラジン、2, 5-ビス[2-(1-ビレニル)ビニル]ピラジン等が挙げられる。

【0037】その他の有機発光材料として、例えは、特定のポリフェニル系化合物、1, 2-フタロペリノン、1, 4-ジフェニル-1, 3-ブタジエン、1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエン、ナフタリイミド誘導体、ペリレン誘導体、オキサジアゾール誘導体、アルダジン誘導体、ピラジリン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ピロロピロール誘導体、スチリルアミン誘導体、クマリン系化合物、および1, 4-フェニレンジメチリジン、4, 4'-フェニレンジメチリジン、2, 5-キシリレンジメチリジン、2, 6-ナフチレンジメチリジン、1, 4-ビフェニレンジメチリジン、1, 4-p-テレフェニレンジメチリジン、9, 10-アントラセンジイルジメチリジン、4, 4'-[(2, 2-ジ-*t*-ブチルフェニルビニル)ビフェニル、4, 4'-(2, 2-ジフェニルビニル)ビフェニル等の芳香族ジメチリジン系化合物およびこれらの誘導体、その他特定の高分子化合物等を挙げができる。

【0038】上記の有機発光材料を用いて発光層を形成する方法としては、例えは蒸着法、スピンドル法、キャスト法、LB法等の公知の方法を適用することができる。発光層は、特に分子堆積膜であることが好ましい。ここで分子堆積膜とは、気相状態の材料化合物から沈着され形成された薄膜や、溶液状態または液相状態の材料化合物から固体化され形成された膜のことであり、通常この分子堆積膜は、LB法により形成された薄膜（分子累積膜）とは凝集構造、高次構造の相違や、それに起因する機能的な相違により区分することができる。また樹脂等の接着剤と有機発光材料とを溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピンドル法等により薄膜化することによって、発光層を形成することができる。このようにして形成される発光層の膜厚については特に制限はなく、状況に応じて適宜選択することができるが、通常5

11

$\text{nm} \sim 5\text{\mu m}$ の範囲が好ましい。

【0039】有機EL素子における発光層は、電界印加時に、透明電極（陽極）または正孔輸送層から正孔を注入することができ、かつ対向電極（陰極）または電子注入層から電子を注入することができる注入機能、注入された電荷（電子と正孔）を電界の力で移動させる輸送機能、電子と正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげる発光機能等を有している。なお、正孔の注入されやすさと電子の注入されやすさとの間には違いがあつても構わない。また、正孔と電子の移動度で表される輸送機能に大小があつてもよいが、少なくともどちらか一方を移動させることができが好ましい。

【0040】透明電極（陽極）と発光層との間に必要に応じて設けられる正孔輸送層の材料としては、従来より光導体材料の正孔注入材料として慣用されているものや有機EL素子の正孔輸送層に使用されている公知のものの中から任意のものを選択して使用することができる。正孔輸送層の材料は、正孔の注入、電子の障壁性のいずれかを有するものであり、有機物あるいは無機物のいずれであつてもよい。

【0041】具体例としては、例えばイミダゾール誘導体、ポリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体およびピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドロゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、ポリシラン系、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマー等の特定の導電性高分子オリゴマー等をあげることができる。

【0042】正孔輸送層の材料としては上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物、芳香族第三級アミン化合物またはスチリルアミン化合物、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

【0043】上記ポルフィリン化合物の例としては、ポルフィリン、1, 10, 15, 20-テトラフェニル-21H, 23H-ポルフィン銅（II）、1, 10, 15, 20-テトラフェニル-21H, 23H-ポルフィン亜鉛（II）、5, 10, 15, 20-テトラキス（ペンタフルオロフェニル）-21H, 23H-ポルフィン、シリコンフタロシアニンオキシド、アルミニウムフタロシアニンクロリド、フタロシアニン（無金属）、ジリチウムフタロシアニン、銅テトラメチルフタロシアニン、銅フタロシアニン、クロムフタロシアニン、亜鉛フタロシアニン、鉛フタロシアニン、チタニウムフタロシアニンオキシド、マグネシウムフタロシアニン、銅オクタメチルフタロシアニン等を挙げることができる。

【0044】また、前記芳香族第三級アミン化合物およびスチリルアミン化合物の代表例としては、N, N, N', N' - テトラフェニル-4, 4' - ジアミノフェニル、N, N' - ジフェニル-N, N' - ピース（3-

12

メチルフェニル）-（1, 1' - ピフェニル）-4, 4' - ジアミン、2, 2-ビス（4-ジ-p-トリルアミノフェニル）プロパン、1, 1-ビス（4-ジ-p-トリルアミノフェニル）シクロヘキサン、N, N, N', N' - テトラ-p-トリル-4, 4' - ジアミノビフェニル、1, 1-ビス（4-ジ-p-トリルアミノフェニル）-4-フェニルシクロヘキサン、ビス（4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル）フェニルメタン、ビス（4-ジ-p-トリルアミノフェニル）フェニルメタン、N, N' - ジフェニル-N, N' - ジ（4-メトキシフェニル）-4, 4' - ジアミノビフェニル、N, N, N', N' - テトラフェニル-4, 4' - ジアミノジフェニルエーテル、4, 4' - ビス（ジフェニルアミノ）クオードリフェニル、N, N, N-トリ（p-トリル）アミン、4-（ジ-p-トリルアミノ）-4' - [4（ジ-p-トリルアミノ）スチリル]スチルベン、4-N, N-ジフェニルアミノ-（2-ジフェニルビニル）ベンゼン、3-メトキシ-4' - N, N-ジフェニルアミノスチルベンゼン、N-フェニルカルバゾール等が挙げられる。また、有機発光材料として示した前述の芳香族ジメチリジン系化合物も、正孔輸送層の材料として使用することができる。

【0045】正孔輸送層は、上述した化合物を、例えば真空蒸着法、スピンドル法、キャスト法、LB法等の公知の方法により薄膜化することにより形成することができる。正孔輸送層としての膜厚は特に限定されないが、通常は $5\text{ nm} \sim 5\text{\mu m}$ である。この正孔輸送層は、上述した材料の1種または2種以上からなる一層構造であつてもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる複層構造であつてもよい。

【0046】発光層と対向電極（陰極）との間に必要に応じて設けられる電子注入層は、対向電極（陰極）から注入された電子を発光層に伝達する機能を有していればよく、その材料としては従来公知の化合物の中から任意のものを選択して用いることができる。

【0047】具体例としては、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、ニトロ置換フルオレノン誘導体、アントラキノジメタン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン誘導体およびアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体、その他特定の電子伝達性化合物等を挙げることができる。

【0048】また、8-キノリノール誘導体の金属錯体、具体的にはトリス（8-キノリノール）アルミニウム、トリス（5, 7-ジクロロ-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（5, 7-ジブロモ-8-キノリノール）アルミニウム、トリス（2-メチル-8-キノリノール）アルミニウム等や、これらの金属錯体の中心金

13

属がIn, Mg, Cu, Ca, Sn, またはPbに置き代わった金属錯体等も電子注入層の材料として用いることができる。その他に、メタルフリーもしくはメタルフタロシアニン、またはそれらの末端がアルキル基、スルホン基等で置換されているものも望ましい。また、発光層の材料として例示したジスチリルピラジン誘導体も、電子注入層の材料として用いることができる。

【0049】電子注入層は、上述した化合物を、例えば真空蒸着法、スピンドルコート法、キャスト法、LB法等の公知の方法により薄膜化することにより形成することができる。電子注入層の膜厚に特に制限はないが、通常は5nm～5μmである。この電子注入層は、上述した材料の1種または2種以上からなる一層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる複層構造であってもよい。

【0050】なお正孔輸送層の材料としては、p型-Si、p型-SiC等の無機化合物を用いることもでき、電子注入層の材料としても、n型-Si、n型-SiC等の無機化合物を用いることもできる。正孔輸送層用の無機材料および電子注入層用の無機材料の具体例としては、国際公開公報WO90-05998に開示されている無機半導体を挙げることができる。

【0051】そして、対向電極（陰極）の材料としては、仕事関数の小さい（例えば4eV以下）金属、合金、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物等が好ましく用いられる。具体例としてはナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウムと銀との合金または混合金属、マグネシウム-銅混化合物、アルミニウム、 $A_1/A_{12}O_3$ 、インジウム、イッテルビウム等の希土類金属等が挙げられる。

【0052】対向電極は、上述した材料を、例えば真空蒸着法、スパッタリング法等の方法により薄膜化することにより形成することができるが、特に、真空蒸着法によって形成することが好ましい。対向電極は発光層からのEL光に対する光透過性を実質的に有していないなくてよく、その膜厚は対向電極の材料にもよるが、通常10nm～1μmの範囲内で適宜選択可能である。対向電極のシート抵抗は数百Ω/□以下が好ましい。なお、対向電極の材料を選択する際に基準とする仕事関数の大きさは1eVに限定されるものではない。

〔0053〕本発明の有機EL素子では、前述した透明電極上に上述した有機発光材料を含む有機単層部（発光層のみからなる層）または有機多層部（発光層の他に、正孔輸送層および電子注入層の少なくとの一方を有する層）が形成されており、この有機単層部上または有機多層部上に上述した対向電極が設けられている。当該有機EL素子は、従来の有機EL素子と同様に、素子への水分や酸素の侵入を防止するための封止層を有していてよい。

【0054】封止層の材料の具体例としては、テトラフ 50

14

ルオロエチレンと少なくとも1種のコモノマーとを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリユリア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロエチレンとの共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質および吸水率0.1%以下の防湿性物質、In, Sn, Pb, Au, Cu, Ag, Al, Ti, Ni等の金属、MgO, SiO, SiO₂, Al₂O₃, GeO, NiO, CaO, BaO, Fe₂O₃, Y₂O₃, TiO₂等の金属酸化物、MgF₂, LiF, AlF₃, CaF₂等の金属フッ化物、パーフルオロアルカン、パーフルオロアミン、パーフルオロポリエーテル等の液状フッ素化炭素および当該液状フッ素化炭素に水分や酸素を吸着する吸着剤を分散させたもの等が挙げられる。

【0055】封止層の形成にあたっては真空蒸着法、スピンコート法、スパッタリング法、キャスト法、MBE(分子線エピタキシ)法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法(高周波励起イオンプレーティング法)、反応性スパッタリング法、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、ガスソースCVD法等を適宜適用することができる。封止層の材料として液状フッ素化炭素や当該液状フッ素化炭素に水分や酸素を吸着する吸着剤を分散させたものを用いる場合には、基板上に形成されている有機EL素子(既に別の封止層があってもよい)の外側に、当該有

30 機E L素子との間に空隙を形成しつつ前記の基板と共同して有機E L素子を覆うハウジング材を設け、前記の基板と前記のハウジング材とによって形成された空間に前記の液状フッ素化炭素や当該液状フッ素化炭素に水分や酸素を吸着する吸着剤を分散させたものを充填することによって封止層を形成することが好ましい。前記のハウジング材としては、吸水率の小さいガラスまたはポリマー（例えば三フッ化塩化エチレン）からなるものが好適に用いられる。ハウジング材を使用する場合には、上述した封止層を設けずに当該ハウジング材のみを設けてもよいし、ハウジング材を設けた後に、当該ハウジング材と前記の基板とによって形成された空間に酸素や水を吸着する吸着材の層を設けるか当該吸着材からなる粒子を分散させててもよい。

40

【0056】以上説明した本発明の有機EL素子は、透明基板として樹脂基板を用いているにもかかわらず、輝度ムラがなく、発光安定性の高いものを得ることが可能な有機EL素子である。輝度ムラがなく、発光安定性の高いものを得ることが可能な理由は、次のように推察される。

【0057】すなわち、本発明の有機EL素子において

15

は、平坦面を有する透明熱硬化性樹脂基板を透明樹脂基板として用いているので、この透明熱硬化性樹脂基板の前記平坦面上に前述のようにして防湿性無機酸化物膜を形成し、この防湿性無機酸化物膜上に前述のようにして透明電極を形成することにより、熱可塑性樹脂基板上に形成された透明電極よりも表面の平坦性が高い透明電極が得られる。そして、当該透明電極上に前述した方法によって有機単層部もしくは有機多層部および対向電極（陰極）を順次積層することによって得た有機EL素子においては、透明電極と対向電極との間のギャップが比較的均一で、透明電極と対向電極との間にかかる電圧もまた比較的均一であると予想される。透明電極と対向電極との間にかかる電圧が比較的均一であれば、透明電極と対向電極との間で局所的に高電圧が生じるということが起こりづらく、その結果として、輝度ムラがなく、発光安定性が高い有機EL素子が得られる。したがって、透明樹脂基板として前述した平坦面を有する透明熱硬化性樹脂基板を用いて前述したようにして有機EL素子を製造することにより、輝度ムラがなく、発光安定性の高い有機EL素子を得ることが可能になる。

【0058】なお、本発明でいう「輝度ムラがない」とは、直径 $50\text{ }\mu\text{m}$ 以上の無発光領域がなく、発光面内の位置によって輝度および色に違いがないことを意味し、本発明でいう「発光安定性が高い」とは、初期点灯（エーリングを除く。）から連続50時間点灯させた後においても本発明でいう「輝度ムラ」がないことを意味する。無発光領域の有無および無発光領域の大きさは、素子を 100 cd/m^2 の輝度で発光させ、このときの発光面を輝度計を用いて観察することによって判断または測定することができる。また、発光面内の位置によっての輝度および色の違いの有無も、同様にして判断または測定することができる。

【0059】

【実施例】以下、本発明の実施例について説明する。

実施例1

(1) 透明熱硬化性樹脂基板

透明樹脂基板として、大きさ $30 \times 25 \times 1\text{ mm}$ のアクリル系透明熱硬化性樹脂基板（全光線透過率93%）を用意した。このアクリル系透明熱硬化性樹脂基板は、日東樹脂工業社製のクレラックス精密板フラットSタイプ（商品名）から切り出したものであり、当該精密板は注型重合法により精密に成形したものである。また、このアクリル系透明熱硬化性樹脂基板の両面は本発明でいう「平坦面」からなり、スローン（Sloan）社製の触針式表面粗さ計（商品名：DEK TAK 3030）を用いて求めた当該平坦面の表面粗さの二乗平均値は 100 オングストローム、当該平坦面上における $500\text{ }\mu\text{m}$ 角の領域内に存在する 600 オングストローム以上の突起の数は、原子間力顕微鏡による形態観察の結果、15個であった。

16

【0060】(2) 防湿性無機酸化物膜の形成

上記(1)のアクリル系透明熱硬化性樹脂基板の片面に、スパッタリングターゲットとしてSiを用いたリアクティブスパッタリング法によって、ケイ素酸化物(SiO_x)からなる膜厚 600 オングストロームの防湿性無機酸化物膜を形成した。このときのリアクティブスパッタリングは、アクリル系透明熱硬化性樹脂基板をスパッタリング装置に装着して真空槽内を $1 \times 10^{-3}\text{ Pa}$ 以下にまで減圧し、Arガス（純度99.99%）とO₂ガス（純度99.99%）との混合ガス(Ar:O₂=1000:2.8(体積比))を真空圧が $1.0 \times 10^{-1}\text{ Pa}$ になるまで真空槽内に導入した後、ターゲット印加電圧 400 V 、基板温度 80°C の条件で行った。

【0061】(3) 透明電極の形成

スパッタリングターゲットとして酸化インジウムと酸化亜鉛との混合物(I_nの原子比I_n/(I_n+Zn)=0.80)からなる焼結体を用いたDCマグネットロンスパッタリング法によって、上記(2)で形成した防湿性無機酸化物膜上に、インジウム元素および亜鉛元素を主要カチオン元素として含有する膜厚 250 nm の非晶質酸化物膜を形成した。このときのDCマグネットロンスパッタリングは、上記(2)で防湿性無機酸化物膜を形成した上記のアクリル系透明熱硬化性樹脂基板をDCマグネットロンスパッタリング装置に装着して真空槽内を $1 \times 10^{-3}\text{ Pa}$ 以下にまで減圧し、Arガス（純度99.99%）とO₂ガス（純度99.99%）との混合ガス(Ar:O₂=1000:2.8(体積比))を真空圧が $1.0 \times 10^{-1}\text{ Pa}$ になるまで真空槽内に導入した後、ターゲット印加電圧 420 V 、基板温度 60°C の条件で行った。

【0062】得られた非晶質酸化物膜におけるI_nの原子比I_n/(I_n+Zn)をICP分析(誘導結合プラズマ発光分光分析；使用機種はセイコー電子工業社製のSPS-1500VR)により求めたところ、スパッタリングターゲットと同一の0.80であった。また、当該酸化物膜が非晶質酸化物膜であることは、X線回折測定(使用機種はリガク社製のロータフレックスRU-200B)により確認された。

【0063】次いで、非晶質酸化物膜まで形成した上記のアクリル系透明熱硬化性樹脂基板を、洗浄液としてイソプロピルアルコールを用いて超音波洗浄した後に吹き付け乾燥し、この後、主波長 2537 オングストローム、 1849 オングストロームの光源を用いたUVオゾン照射装置(サコムインターナショナル研究所製のUV-300)により基板温度室温、O₂ガス導入量 10 l/min 、処理時間 10 分 の条件で上記の非晶質酸化物膜にUVオゾン照射を行った。これにより非晶質酸化物膜の表面が清浄化され、目的とする透明電極が得られた。

50 【0064】(4) 有機EL素子の形成

上記(3)で透明電極まで形成したアクリル系透明熱硬化性樹脂基板を市販の蒸着装置(日本真空技術(株)製)の基板ホルダに固定し、モリブデン製の抵抗加熱ポートにN,N'-ジフェニル-N,N'-ビス-(3-メチルフェニル)-[1,1'-ビフェニル]-4,4'-ジアミン(以下「TPD」と略記する。)を200mg入れ、また違うモリブデン製の抵抗加熱ポートにトリス(8-キノリノール)アルミニウム(以下「Alq₃」と略記する。)を200mg入れて、真空槽を 1×10^{-4} Paまで減圧した。

【0065】その後、TPD入りの前記ポートを215~220°Cにまで加熱し、TPDを蒸着速度1~3オングストローム/秒で上記の透明電極上に蒸着して、膜厚600オングストロームの正孔輸送層を成膜した。このときの基板温度は室温であった。これを真空槽から取り出すことなく、正孔輸送層の上にAlq₃からなる膜厚600オングストロームの発光層を成膜した。このときの蒸着条件は、ポート温度230°C、蒸着速度0.1~0.2オングストローム/秒、基板温度室温とした。これを真空槽から取り出し、上記発光層の上にステンレススチール製のマスクを設置し、再び基板ホルダーに固定した。

【0066】次に、モリブデン製の抵抗加熱ポートにマグネシウムリボン1gを入れ、また違うタンクステン製バスケットに銀ワイヤー500mgを装着した。その後、真空槽を 2×10^{-4} Paまで減圧してから、銀を1オングストローム/秒の蒸着速度で蒸着させると同時に、抵抗加熱法によりもう一方のモリブデン製ポートからマグネシウムを14オングストローム/秒の蒸着速度で蒸着させた。これにより、マグネシウムと銀の混合金属からなる膜厚1500オングストロームの対向電極が発光層上に形成され、目的とする有機EL素子が得られた。この有機EL素子においては、TPDからなる正孔輸送層とAlq₃からなる発光層とによって有機多層部が形成されてる。

【0067】(5)評価

上記(4)で得られた有機EL素子の透明電極を陽極とし、対向電極を陰極として用いて、素子の輝度が100cd/m²となるように当該有機EL素子に大気中にて直流電界を印加し、このときの変換効率ηを次式によつて求めた。

【数1】

$$\eta = 100\pi / (JV \times 10)$$

η: 変換効率 (lm/W)

π: 円周率

J: 電流密度 (mA/cm²)

V: 電圧 (V)

【0068】また、このときの発光面を輝度計(ミノルタカメラ(株)製のCS-100)を用いて観察し、発

10 50 光の均一性、すなわち、無発光領域の有無ならびに発光面内の位置によっての輝度および色の違いの有無を評価した。さらに、100cd/m²の輝度で50時間連続駆動させた後の発光の均一性を評価した。これらの結果を表1に示す。

【0069】実施例2

実施例1で用いたアクリル系透明熱硬化性樹脂基板と同質、同形状のアクリル系透明熱硬化性樹脂基板の片面に、実施例1(2)と同様にして防湿性無機酸化物膜を

10 形成した後、スパッタリングターゲットとして酸化インジウムと酸化錫の複合酸化物(ITO: InとSnの原子比In/Sn=9/1)からなる焼結体を用いたECRプラズマスパッタリング法によって、防湿性無機酸化物膜上に膜厚120nmの結晶質ITO膜からなる透明電極を形成した。

【0070】このときのスパッタリングは、防湿性無機酸化物膜を形成した後のアクリル系透明熱硬化性樹脂基板をスパッタリング装置に装着して真空槽内を 1×10^{-3} Pa以下にまで減圧し、Arガス(純度99.99%)とO₂ガス(純度99.99%)との混合ガス(Ar:O₂=1000:2.8(体積比))を真空圧が 2.0×10^{-1} Paになるまで真空槽内に導入した後、ターゲット印加電圧420V、基板温度80°Cの条件を行った。

【0071】上述のようにして形成された結晶質ITO膜のグレインサイズを電気顕微鏡を用いて求めたところ、200~500オングストロームであった。また、各グレイン(微結晶粒)は球形または回転楕円体形を呈していた。この後、上記の結晶質ITO膜からなる透明電極上に実施例1(4)と同様にして正孔輸送層、発光層および対向電極を形成して、目的とする有機EL素子を得た。

【0072】この有機EL素子について、実施例1(5)で測定ないし評価した項目と同じ項目を実施例1(5)と同様にして測定ないし評価した。これらの結果を表1に示す。

【0073】比較例1

透明樹脂基板として、熱可塑性樹脂の1つであるPET(ポリエチレンテレフタレート)からなる大きさ30×25×1mmの基板(以下、この基板を「PET基板」という。)を用いた。このPET基板について、表面粗さの二乗平均値を実施例1(1)と同様にして求めたところ、410オングストロームであった。また、当該PET基板上における500μm角の領域内に存在する600オングストローム以上の突起の数を実施例1(1)と同様にして求めたところ、110個であった。したがって、このPET基板は、本発明でいう「平坦面」をしていない。上記のPET基板の片面に実施例2と同様にして防湿性無機酸化物膜および結晶質ITO膜からなる透明電極を形成して、有機EL素子を得た。この有機

E L 素子について、実施例1(5)で測定ないし評価した項目と同じ項目を実施例1(5)と同様にして測定ないし評価した。これらの結果を表1に示す。

*
表1

*【0074】

【表1】

	透明樹脂基板		透明電極の性状	有機E L 素子*2		
	表面粗さの二乗平均値 (オングストローム)	突起の数*1 (個)		変換効率 η (lm/W)	初期の 発光均一性	連続駆動後の 発光均一性*3
実施例1	100	15	非晶質	2.0	○	○
実施例2	110	14	グレインサイズ200~500 オングストロームの結晶質	1.9	○	○
比較例1	410	110	グレインサイズ400~1000 オングストロームの結晶質	1.8	△	×

*1: 平坦面上における $500\mu\text{m}$ 角の領域内に存在する 600 オングストローム以上の突起の数を示す。

*2: ○…直径 $50\mu\text{m}$ 以上の無発光領域がなく、発光面内の位置によって輝度および色に違いがない。

△…直径 $50\mu\text{m}$ 以上の無発光領域または発光面内の位置によっての輝度もしくは色に違いがあり、その割合が 10% 未満である。

×…無発光領域が 10% 以上ある。

*3: 50時間連続駆動後の発光均一性を示す。

【0075】表1から明らかなように、実施例1および実施例2で得られた各有機E L 素子は、比較例1で得られた有機E L 素子よりも変換効率 η が高く、かつ、初期の発光均一性および50時間連続駆動後の発光均一性のいずれも、比較例1で得られた有機E L 素子より優れている。特に発光均一性については、比較例1の有機E L 素子では初期の段階で既に無発光領域がみられ、50時間連続駆動後においてはその割合が 50% 以上にまで増加したのに対し、実施例1および実施例2の各有機E L 素子では、初期の段階では勿論、50時間連続駆動後においても無発光領域は認められなかった。また、実施例1および実施例2の各有機E L 素子では、初期の段階では勿論、50時間連続駆動後においても、発光面内の位※

※置によっての輝度および色の違いは認められなかった。

このように、実施例1および実施例2の各有機E L 素子は、輝度ムラがなく、発光安定性が高い。

【0076】

【発明の効果】以上説明したように、本発明の有機E L 素子は、透明基板として透明樹脂基板を用いているにもかかわらず、輝度ムラがなく、発光安定性の高いものを得ることが可能な素子である。したがって本発明によれば、透明基板としてガラス基板を用いた有機E L 素子よりも軽量で耐衝撃性に優れ、かつ、輝度ムラがなく、発光安定性の高い有機E L 素子を提供することが可能になる。